

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 7 月 4 日 (04.07.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/052904 A1

- (51) 国際特許分類: H05B 33/14, 33/22, C09K 11/06 Chishio); 〒299-0205 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/10789
- (22) 国際出願日: 2001 年 12 月 10 日 (10.12.2001) (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒105-0001 東京都港区虎ノ門3丁目8番27号 巴町アネックス2号館4階 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): CN, IN, KR.
- (30) 優先権データ: 特願 2000-394152 (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
2000 年 12 月 26 日 (26.12.2000) JP
- (71) 出願人: 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒100-8321 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo (JP). 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- (72) 発明者: 荒金崇士 (ARAKANE, Takashi). 福岡賢一 (FUKUOKA, Kenichi). 細川地潮 (HOSOKAWA, 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE DEVICE

(54) 発明の名称: 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) Abstract: An electroluminescence device comprises a pair of electrodes and an organic luminescent medium layer interposed between the electrodes. The organic luminescent medium layer has a mixture layer containing (A) at least one kind of positive hole transporting compounds and at (B) least one kind of electron transporting compound. The energy gap Eg1 of the positive hole transporting compound and the energy gap Eg2 of the electron hole transporting compound satisfy the relation $Eg1 < Eg2$. Electrons and positive holes are recombined in the organic luminescent medium layer and thereby light is emitted. The electroluminescence device has a long service life and emits light with high-efficiency.

(57) 要約:

一対の電極と、これらの電極間に挟持された有機発光媒体層とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機発光媒体層が (A) 少なくとも一種の正孔輸送性化合物と、(B) 少なくとも一種の電子輸送性化合物とを含有する混合層を有し、前記正孔輸送性化合物のエネルギーギャップ $Eg1$ と前記電子輸送性化合物のエネルギーギャップ $Eg2$ が、 $Eg1 < Eg2$ の関係を満たし、前記有機発光媒体層中で、電子と正孔が再結合し発光する有機エレクトロルミネッセンス素子である。本発明は、寿命が長く、かつ高効率の発光が得られる有機EL素子を提供する。

明 細 書

有機エレクトロルミネッセンス素子

技術分野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス（以下、「EL」と略記する。）素子に関し、さらに詳しくは、寿命が長く、かつ高効率の発光が得られる有機EL素子に関するものである。

背景技術

電界発光を利用したEL素子は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れるなどの特徴を有することから、各種表示装置における発光素子としての利用が注目されている。

このEL素子には、発光材料に無機化合物を用いてなる無機EL素子と有機化合物を用いてなる有機EL素子とがあり、このうち、特に有機EL素子は、印加電圧を大幅に低くしうる上、小型化が容易であって、消費電力が小さく、面発光が可能であり、かつ三原色発光も容易であることから、次世代の発光素子としてその実用化研究が積極的になされている。

有機EL素子の構成としては、陽極／有機発光層／陰極の構成を基本とし、これに正孔注入輸送層や電子注入層を適宜設けたもの、例えば、陽極／正孔注入輸送層／有機発光層／陰極や、陽極／正孔注入輸送層／有機発光層／電子注入層／陰極などが知られている。

このような有機EL素子の実用化に当たっては、寿命が長く、かつ高効率の発光素子を得るべく、種々検討が行われてきたが、より低消費電力を目指しさらに高効率で、長寿命な素子の要望がある。

例えば、国際公開98／08360及び米国特許5853905には、エネル

ギーギャップが3 e V以上である正孔輸送性のアミン誘導体と電子輸送性化合物である8-ヒドロキシキノリンのAl錯体(Alq)の混合層を発光媒体に用いた素子が開示されている。Alqのエネルギーギャップは2.7 e Vであるので、この発光媒体では、より低エネルギーギャップであるAlqにおいて正孔と電子が再結合して発光する。また、Alq自体は蛍光量子収率が小さいので、さらにクマリン、ルブレン等の発光性ドーパントが添加され高効率化されている。

しかしながら、これらの文献に記載の技術は、長寿命化に限界がある。すなわち、一般に高い電子移動を実現できる化合物で通電耐久性のある有機材料は少なかった。Alqにおいては電子の輸送に対し耐久性はあるものの、正孔がAlqに注入されると劣化することが認められた。前記発光媒体では、正孔輸送性化合物のエネルギーギャップ E_{g1} と電子輸送性化合物Alqのエネルギーギャップ E_{g2} が、 $E_{g1} > E_{g2}$ であったため、エネルギーギャップの小さいAlqに正孔が注入され易く、長寿命化には限界があった。また、クマリン、ルブレン等の発光性ドーパントが添加された場合、Alqの耐久性は向上することが知られているが、さらに改良求められていた。

発明の開示

本発明は、このような状況下で、従来の有機EL素子よりも、寿命が長く、かつ高効率の発光が得られる有機EL素子を提供することを目的とするものである。

本発明者らは、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、有機発光媒体層を有する有機EL素子において、該有機発光媒体層が(A)少なくとも一種の正孔輸送性化合物と、(B)少なくとも一種の電子輸送性化合物とを含有する混合層を有し、前記正孔輸送性化合物のエネルギーギャップ E_{g1} が前記電子輸送性化合物のエネルギーギャップ E_{g2} より小さいと、従来の有機EL素子よりも、寿命が長く、かつ高効率の発光が得られることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。

すなわち、本発明は、一对の電極と、これらの電極間に挟持された有機発光媒体層とを有する有機EL素子であって、該有機発光媒体層が（A）少なくとも一種の正孔輸送性化合物と、（B）少なくとも一種の電子輸送性化合物とを含有する混合層を有し、前記正孔輸送性化合物のエネルギーギャップ $E_g 1$ と前記電子輸送性化合物のエネルギーギャップ $E_g 2$ が、 $E_g 1 < E_g 2$ の関係を満たす有機EL素子を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の有機EL素子は、一对の電極と、これらの電極間に挟持された有機発光媒体層とを有する有機EL素子であって、有機発光媒体層が（A）少なくとも一種の正孔輸送性化合物と、（B）少なくとも一種の電子輸送性化合物とを含有する混合層を有し、正孔輸送性化合物のエネルギーギャップ $E_g 1$ と前記電子輸送性化合物のエネルギーギャップ $E_g 2$ が、 $E_g 1 < E_g 2$ の関係を満たす。

このため、有機発光媒体層中で、正孔輸送性化合物により正孔が輸送されるとともに再結合領域において、正孔輸送性化合物に電子が注入され、電子と正孔が再結合し発光する。したがって、電子輸送性化合物に正孔が注入されにくいため、電子輸送性化合物が劣化しにくく、素子が長寿命化する。また、正孔輸送性化合物は電子注入に対し耐久性を付与することが可能である。

前記正孔輸送性化合物のイオン化エネルギー $IP 1$ と前記電子輸送性化合物のイオン化エネルギー $IP 2$ が、 $IP 1 \leq IP 2$ の関係を満たすことが好ましい。

このようにすることで、正孔が、発光媒体の外部層より正孔輸送性化合物の最低被占軌道に注入されやすくなる。ここで外部層とは、発光媒体以外の層であり、陽極、正孔注入層、正孔輸送層又はバッファ層等である。

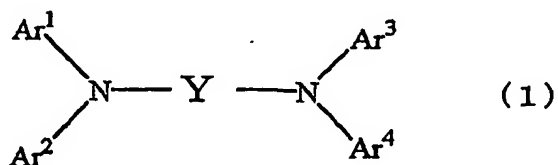
前記正孔輸送性化合物の電子親和力 $Af 1$ と前記電子輸送性化合物の電子親和力 $Af 2$ が、 $Af 1 \leq Af 2$ の関係を満たすことが好ましい。電子親和力 $Af 1$ 及び $Af 2$ は、電子の真空準位を基準に測った最低非被占軌道のエネルギー値で

ある。このようにすることで、電子が、発光媒体の外部層より電子輸送性化合物の最低非被占軌道に注入されやすくなる。ここで外部層とは、発光媒体以外の層であり、陰極、電子注入層、電子輸送層、正孔阻止層又はバッファ層等である。このとき、 $\Delta E_v = IP_2 - IP_1$ と $\Delta E_c = Af_2 - Af_1$ が、 $\Delta E_v \geq \Delta E_c$ の関係を満たすことが好ましい。このようにすることで、電子輸送性化合物を介し、正孔輸送性化合物の最低非被占軌道に電子が注入されやすくなる。一方、電子輸送性化合物の最低非被占軌道には正孔が注入されにくくなる。

また、前記正孔輸送性化合物の電子親和力 Af_1 と前記電子輸送性化合物の電子親和力 Af_2 が、 $Af_1 > Af_2$ の関係を満たしていてもよい。このような場合、正孔輸送性化合物は実質的に電子を輸送しないか、又はその電子移動度が電子輸送性化合物の電子移動度より低い場合である。このとき、 $\Delta E_v = IP_2 - IP_1$ と $\Delta E_{c'} = Af_1 - Af_2$ が、 $\Delta E_v \geq \Delta E_{c'}$ の関係を満たすことが好ましい。このようにすることで、正孔輸送性化合物のトラップ作用が弱まり電子輸送性化合物により伝達される電子が再結合領域に到達しやすくなる。

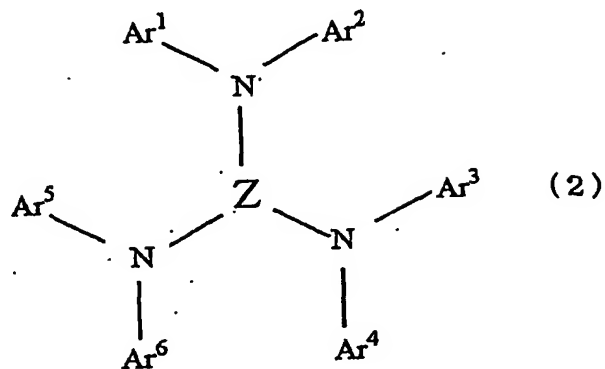
本発明の有機EL素子で使用する前記正孔輸送性化合物は、縮合環を有する芳香族アミンであることが好ましい。

この芳香族アミンは、下記一般式(1)又は(2)で表されるものであることが好ましい。



(式中、 $Ar^1 \sim Ar^4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基を表す。Yは、置換もしくは無置換の炭素数2～60の芳香族残基を表す。ただし、 $Ar^1 \sim Ar^4$ 及びYのうち少なくとも一つは環数が3以上の縮合環基を

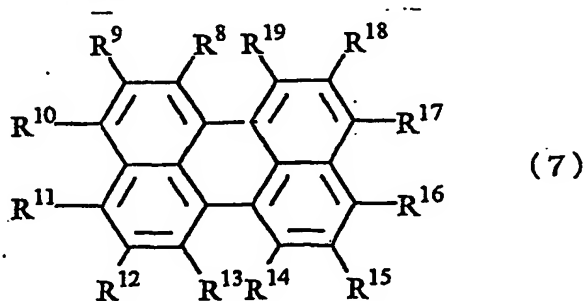
含有し、 $Ar^1 \sim Ar^4$ 及びYの置換基は、 $Ar^1 \sim Ar^4$ 及びYのうちの任意の2つと環を形成していてもよい。)



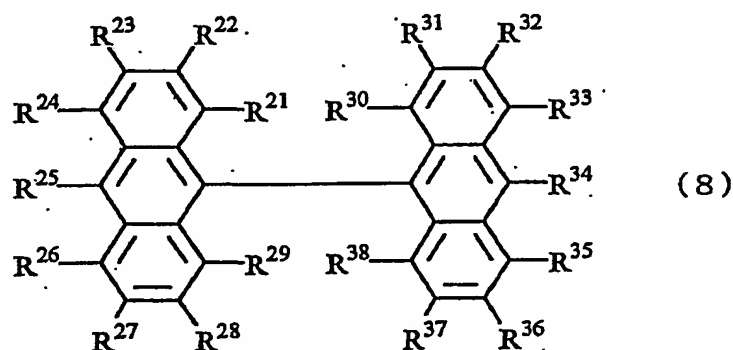
(式中、 $Ar^1 \sim Ar^6$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基を表す。Zは、置換もしくは無置換の炭素数3～60の芳香族残基を表す。ただし、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 及びZのうち少なくとも一つは環数が3以上の縮合環基を含有し、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 及びZの置換基は、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 及びZのうちの任意の2つと環を形成していてもよい。)

前記一般式(1)及び(2)において、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 、Y及びZの好ましい例としては、アントラセン、クリセン、フルオレン、ピレン、ペリレン、ナフタセン、ペンタセン、コロネン、フルオランテン、ベリレン、ピセン、ルビセン又はアセナフトフルオランテンよりなる芳香族残基である。

前記一般式(1)及び(2)の化合物としては、下記一般式(7)～(11)のいずれかで表されると好ましい。

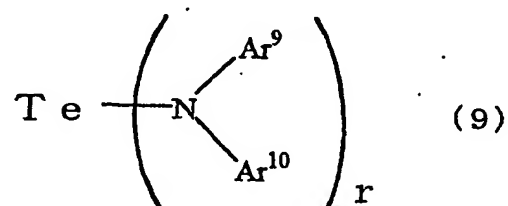


(式中、 $R^8 \sim R^{19}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルコシキカルボニル基又はカルボキシル基を表す。 $R^8 \sim R^{19}$ は、それらのうちの2つで環を形成していてもよい。ただし、 $R^8 \sim R^{19}$ のうち少なくとも一つは $-NAr^7 Ar^8$ (Ar^7 、 Ar^8 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基を表す。) で表されるジアリールアミノ基である。)

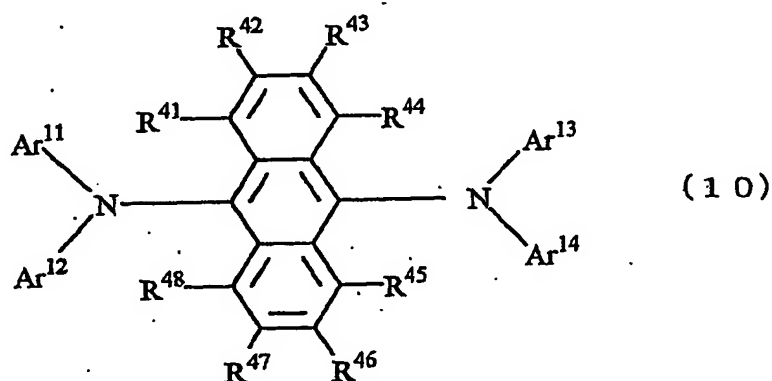


(式中、 $R^{21} \sim R^{38}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環

基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルコシカルボニル基又はカルボキシル基を表す。 $R^{21} \sim R^{38}$ は、それらのうちの2つで環を形成していてもよい。ただし、 $R^{21} \sim R^{38}$ のうち少なくとも一つは $-NAr^7 Ar^8$ (Ar^7 、 Ar^8 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基を表す。) で表されるジアリールアミノ基である。)

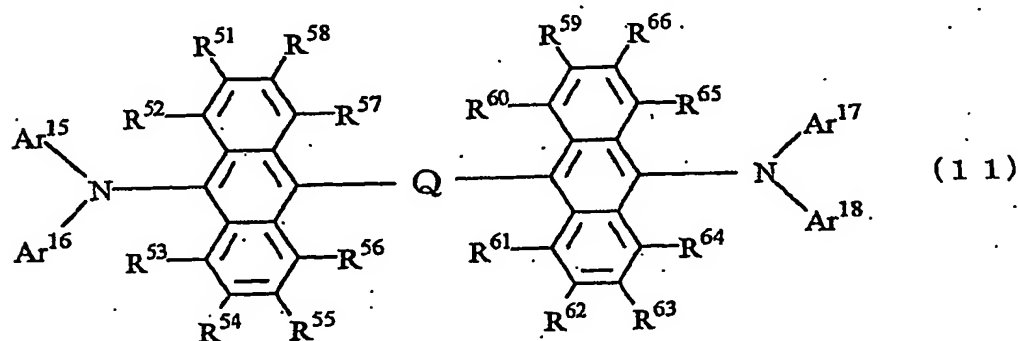


(式中、Teはテリレン残基を表し、 Ar^9 及び Ar^{10} は、それぞれ独立に、置換もしくは未置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の単環基、置換または未置換の炭素数6～40の縮合多環基を表し、rは1～6の整数を表す。)



(式中、 $Ar^{11} \sim Ar^{14}$ は、それぞれ独立に、置換もしくは未置換の炭素数6～16のアリール基を表す。式中、 $R^{41} \sim R^{48}$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシク

ロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルコシキカルボニル基又はカルボキシル基を表す。R⁴¹～R⁴⁸は、それらのうちの2つで環を形成していてもよい。）



(式中、Ar¹⁵～Ar¹⁸は、それぞれ独立に、置換もしくは未置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは未置換の単環基、置換もしくは未置換の炭素数8～40の縮合多環基、またはAr¹⁵とAr¹⁶、Ar¹⁷とAr¹⁸が一体となって窒素原子を結合手とする縮合多環基を表す。Qは、単環基または複数の環基が結合した2価の結合基を表し、置換基を有しても有さなくてもよい。R⁵¹～R⁶⁶は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数2～30のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数5～30のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数1～30のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数7～40のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～40のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数2～40のアルコシキカルボニル基又はカルボキシル基を表す。R⁵¹～R⁶⁶は、それらのうちの2つで環を形成し

ていてもよい。)

本発明で使用する芳香族アミン化合物、芳香族ジアミン化合物及び芳香族トリアミン化合物は、上記で一般式(1)、(2)及び(7)～(11)で表される構造を有する化合物であり、各一般式において、好ましい置換基としては、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルケニル基、置換もしくは無置換のシクロアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基、置換もしくは無置換のアラルキル基、置換もしくは無置換のアリール基、置換もしくは無置換のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基又はカルボキシル基である。

置換もしくは無置換のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1,2-ジヒドロキシエチル基、1,3-ジヒドロキシイソプロピル基、2,3-ジヒドロキシ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1,2-ジクロロエチル基、1,3-ジクロロイソプロピル基、2,3-ジクロロ-*t*-ブチル基、1,2,3-トリクロロプロピル基、ブromoメチル基、1-ブromoエチル基、2-ブromoエチル基、2-ブromoイソブチル基、1,2-ジブromoエチル基、1,3-ジブromoイソプロピル基、2,3-ジブromo-*t*-ブチル基、1,2,3-トリブromoプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1,2-ジヨードエチル基、1,3-ジヨードイソプロピル基、2,3-ジヨード-*t*-ブチル基、1,2,3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノ

エチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノト-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノト-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロト-ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルケニル基としては、ビニル基、アリル基、1-ブテニル基、2-ブテニル基、3-ブテニル基、1, 3-ブタンジエニル基、1-メチルビニル基、スチリル基、2, 2-ジフェニルビニル基、1, 2-ジフェニルビニル基、1-メチルアリル基、1, 1-ジメチルアリル基、2-メチルアリル基、1-フェニルアリル基、2-フェニルアリル基、3-フェニルアリル基、3, 3-ジフェニルアリル基、1, 2-ジメチルアリル基、1-フェニル-1-ブテニル基、3-フェニル-1-ブテニル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、4-メチルシクロヘキシル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルコキシ基は $-OY^1$ で表され、 Y^1 としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、イソブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、n-ヘキシル基、n-ヘプチル基、n-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシト-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル

基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロトール基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモトール基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨードトール基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノトール基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノトール基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロトール基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル

基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニル基、4''-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換の芳香族複素環基としては、1-ピロリル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、1-インドリル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、2-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、9-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、10-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、フェナンスロリル、2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1

ーイル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-ト-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-ト-ブチル-1-インドリル基、4-ト-ブチル-1-インドリル基、2-ト-ブチル-3-インドリル基、4-ト-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアラルキル基としては、ベンジル基、1-フェニルエチル基、2-フェニルエチル基、1-フェニルイソプロピル基、2-フェニルイソプロピル基、フェニル-ト-ブチル基、 α -ナフチルメチル基、1- α -ナフチルエチル基、2- α -ナフチルエチル基、1- α -ナフチルイソプロピル基、2- α -ナフチルイソプロピル基、 β -ナフチルメチル基、1- β -ナフチルエチル基、2- β -ナフチルエチル基、1- β -ナフチルイソプロピル基、2- β -ナフチルイソプロピル基、1-ピロリルメチル基、2-(1-ピロリル)エチル基、p-メチルベンジル基、m-メチルベンジル基、o-メチルベンジル基、p-クロロベンジル基、m-クロロベンジル基、o-クロロベンジル基、p-ブロモベンジル基、m-ブロモベンジル基、o-ブロモベンジル基、p-ヨードベンジル基、m-ヨードベンジル基、o-ヨードベンジル基、p-ヒドロキシベンジル基、m-ヒドロキシベンジル基、o-ヒドロキシベンジル基、p-アミノベンジル基、m-アミノベンジル基、o-アミノベンジル基、p-ニトロベンジル基、m-ニトロベンジル基、o-ニトロベンジル基、p-シアノベンジル基、m-シアノベンジル基、o-シアノベンジル基、1-ヒドロキシ-2-フェニルイソプロピル基、1-クロロ-2-フェニルイソプロピル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアリール基としては、フェニル基、1-ナフチル基、2

ーナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-tert-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''-tert-ブチル-p-ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナン

スリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, フェナンスロリル2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2-ト-ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-ト-ブチル1-インドリル基、4-ト-ブチル1-インドリル基、2-ト-ブチル3-インドリル基、4-ト-ブチル3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアリールオキシ基は-OZ' で表され、Z' としては、フェニル基、1-ナフチル基、2-ナフチル基、1-アントリル基、2-アントリル基、9-アントリル基、1-フェナントリル基、2-フェナントリル基、3-フェナントリル基、4-フェナントリル基、9-フェナントリル基、1-ナフタセニル基、2-ナフタセニル基、9-ナフタセニル基、1-ピレニル基、2-ピレニル基、4-ピレニル基、2-ビフェニルイル基、3-ビフェニルイル基、4-ビフェニルイル基、p-ターフェニル-4-イル基、p-ターフェニル-3-イル基、p-ターフェニル-2-イル基、m-ターフェニル-4-イル基、m-ターフェニル-3-イル基、m-ターフェニル-2-イル基、o-トリル基、m-トリル基、p-トリル基、p-ト-ブチルフェニル基、p-(2-フェニルプロピル)フェニル基、3-メチル-2-ナフチル基、4-メチル-1-ナフチル基、4-メチル-1-アントリル基、4'-メチルビフェニルイル基、4''

ー ϵ -ブチル- p -ターフェニル-4-イル基、2-ピロリル基、3-ピロリル基、ピラジニル基、2-ピリジニル基、3-ピリジニル基、4-ピリジニル基、2-インドリル基、3-インドリル基、4-インドリル基、5-インドリル基、6-インドリル基、7-インドリル基、1-イソインドリル基、3-イソインドリル基、4-イソインドリル基、5-イソインドリル基、6-イソインドリル基、7-イソインドリル基、2-フリル基、3-フリル基、2-ベンゾフラニル基、3-ベンゾフラニル基、4-ベンゾフラニル基、5-ベンゾフラニル基、6-ベンゾフラニル基、7-ベンゾフラニル基、1-イソベンゾフラニル基、3-イソベンゾフラニル基、4-イソベンゾフラニル基、5-イソベンゾフラニル基、6-イソベンゾフラニル基、7-イソベンゾフラニル基、2-キノリル基、3-キノリル基、4-キノリル基、5-キノリル基、6-キノリル基、7-キノリル基、8-キノリル基、1-イソキノリル基、3-イソキノリル基、4-イソキノリル基、5-イソキノリル基、6-イソキノリル基、7-イソキノリル基、8-イソキノリル基、2-キノキサリニル基、5-キノキサリニル基、6-キノキサリニル基、1-カルバゾリル基、2-カルバゾリル基、3-カルバゾリル基、4-カルバゾリル基、1-フェナンスリジニル基、2-フェナンスリジニル基、3-フェナンスリジニル基、4-フェナンスリジニル基、6-フェナンスリジニル基、7-フェナンスリジニル基、8-フェナンスリジニル基、9-フェナンスリジニル基、1-アクリジニル基、2-アクリジニル基、3-アクリジニル基、4-アクリジニル基、9-アクリジニル基、1, フェナンスロリル2-チエニル基、3-チエニル基、2-メチルピロール-1-イル基、2-メチルピロール-3-イル基、2-メチルピロール-4-イル基、2-メチルピロール-5-イル基、3-メチルピロール-1-イル基、3-メチルピロール-2-イル基、3-メチルピロール-4-イル基、3-メチルピロール-5-イル基、2- ϵ -ブチルピロール-4-イル基、3-(2-フェニルプロピル)ピロール-1-イル基、2-メチル-1-インドリル基、4-メチル-1-インドリル基、2-メチル-

3-インドリル基、4-メチル-3-インドリル基、2-*tert*-ブチル-1-インドリル基、4-*tert*-ブチル-1-インドリル基、2-*tert*-ブチル-3-インドリル基、4-*tert*-ブチル-3-インドリル基等が挙げられる。

置換もしくは無置換のアルコキシカルボニル基は $-COOY^2$ で表され、 Y^2 としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、*s*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、*n*-オクチル基、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシイソブチル基、1, 2-ジヒドロキシエチル基、1, 3-ジヒドロキシイソプロピル基、2, 3-ジヒドロキシ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヒドロキシプロピル基、クロロメチル基、1-クロロエチル基、2-クロロエチル基、2-クロロイソブチル基、1, 2-ジクロロエチル基、1, 3-ジクロロイソプロピル基、2, 3-ジクロロ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリクロロプロピル基、ブロモメチル基、1-ブロモエチル基、2-ブロモエチル基、2-ブロモイソブチル基、1, 2-ジブロモエチル基、1, 3-ジブロモイソプロピル基、2, 3-ジブロモ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリブロモプロピル基、ヨードメチル基、1-ヨードエチル基、2-ヨードエチル基、2-ヨードイソブチル基、1, 2-ジヨードエチル基、1, 3-ジヨードイソプロピル基、2, 3-ジヨード-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリヨードプロピル基、アミノメチル基、1-アミノエチル基、2-アミノエチル基、2-アミノイソブチル基、1, 2-ジアミノエチル基、1, 3-ジアミノイソプロピル基、2, 3-ジアミノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリアミノプロピル基、シアノメチル基、1-シアノエチル基、2-シアノエチル基、2-シアノイソブチル基、1, 2-ジシアノエチル基、1, 3-ジシアノイソプロピル基、2, 3-ジシアノ-*tert*-ブチル基、1, 2, 3-トリシアノプロピル基、ニトロメチル基、1-ニトロエチル基、2-ニトロエチル基、2-ニトロイソブチル基、1, 2-ジニトロエチル基、1, 3-ジニトロイソプロピル基、2, 3-ジニトロ-*tert*-

ブチル基、1, 2, 3-トリニトロプロピル基等が挙げられる。

本発明の有機EL素子で使用する電子輸送性化合物は、含窒素複素環化合物又は含窒素錯体であることが好ましく、含窒素錯体が特に好ましい。含窒素複素環化合物又は含窒素錯体は、電子親和力が2.7 eV以上と大きく、また、電子移動度も $1 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{V} \cdot \text{S}$ 以上と速いためである。

含窒素複素環化合物としては、例えば、2-(4-ビフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール、ビス[2-(4-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール]-m-フェニレン等のオキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、キノキサリンキノリン誘導体等が挙げられる。

前記含窒素錯体は、下記一般式(3)で表されることが好ましい。



(式中、Mは1～3価の金属、Aは窒素含有配位子、Bは窒素を含有しない配位子を表し、mは1～4の整数、nは0～2の整数、 $m+n \leq 4$ である。)

Mの金属の種類としては、例えば、Li、Na、Cs、Be、Mg、Ca、Ba、Zn、Cd、Al、Ga、In、又はYb等が挙げられ、Al、Be又はGaが好ましい。

窒素含有配位子Aとしては、例えばキノリノール系配位子又はベンゾキノリノール系配位子が挙げられる。

前記含窒素錯体としては、例えば下記一般式(i)～(iii)で表されるものであってもよい。

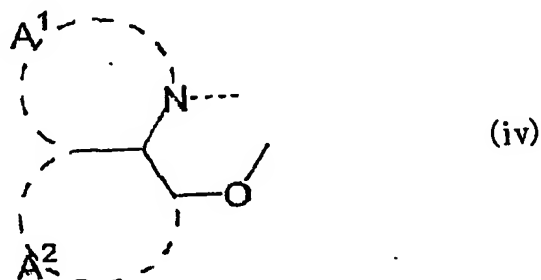
(i) $\text{M}^+ \text{A}$ 又は $\text{M}^+ \text{A}'$ (M^+ は一価金属イオン)

(ii) $\text{M}^{2+} \text{A}_2$ 、 $\text{M}^{2+} \text{A} \text{A}'$ 又は $\text{M}^{2+} \text{A}'_2$ (M^{2+} は二価金属イオン)

(iii) $\text{M}^{3+} \text{A}_3$ 、 $\text{M}^{3+} \text{A}_2 \text{A}'$ 、 $\text{M}^{3+} \text{A} \text{A}'_2$ 又は $\text{M}^{3+} \text{A}'_3$ (M^{3+} は三価金属イオン)

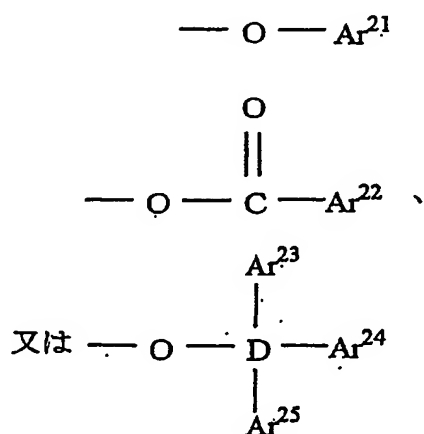
窒素含有配位子A及びA'は、それぞれ独立に、下記一般式(iv)表される配位

子である。ただし、AとA' は、置換基の部分が相違していてもよい。置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アリール基等が挙げられる。



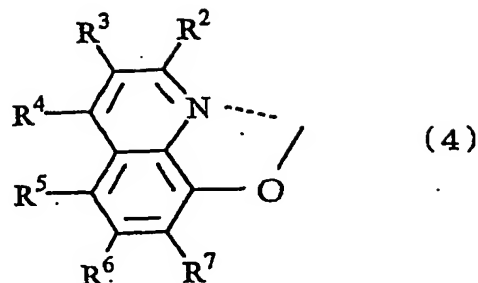
(式中、A' 及びA² は、それぞれ独立に、置換もしくは未置換の芳香族環であり、同一でも異なってもよい。)

また、窒素含有配位子A及びA' は、



(式中、Dは、Si、Ge又はSnのいずれかの原子を表わし、Ar²¹~Ar²⁵ は、それぞれ独立に、置換基を有していてもよい、芳香族炭化水素基又は芳香族複素環基を表わす。)であってもよく、さらにベンゾアゾールであってもよく、ベンゾアゾールとしては、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾオキサゾール誘導体が挙げられる。

これらのなかでも、特に好ましい窒素含有配位子A及びA' としては、下記の一般式(4)で表されるものである。



(式中、 $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシル基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 30 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 5 ～ 30 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルコシキカルボニル基又はカルボキシ基を表し、 $R^2 \sim R^7$ は、任意の 2 つで環を形成していてもよい。)

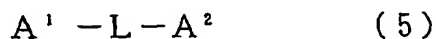
前記含窒素錯体として、窒素含有配位子を有する錯体は、例えば、8-キノリノールないしその誘導体から導かれる窒素含有配位子からなるトリス(8-キノリノラト)アルミニウム、ビス(8-キノリノラト)マグネシウム、ビス(ベンゾ[f]-8-キノリノラト)亜鉛、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウムオキシド、トリス(8-キノリノラト)インジウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム、8-キノリノラトリチウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノラト)カルシウム、5, 7-ジクロロ-8-8-キノリノラトアルミニウム、トリス(5, 7-ジブromo-8-ヒドロキシキノリノラト)アルミニウム、ポリ[亜鉛(II)-ビス(8-ヒドロキシ-5-キノリニル)メタン]等が挙げられる。

また、窒素含有配位子以外に窒素を含有しない配位子も有する錯体としては、

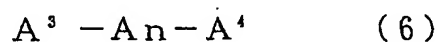
例えば、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(フェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(オルトクレゾラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(メタクレゾラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(パラクレゾラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(オルトフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(メタフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(パラフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2,3-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2,6-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(3,4-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(3,5-ジメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2,6-ジフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2,4,6-ジトリフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2,3,6-トリメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2,3,5,6-テトラメチルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(1-ナフトラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリラト)(2-ナフトラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリラト)(オルトフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリラト)(パラフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリラト)(メタフェニルフェノラト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリラト)(3,5-ジメチルフェノト)アルミニウム(III)、ビス(2,4-ジメチル-

8-キノリラト) (3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラト) アルミニウム (I
II)、ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリラト) (パラクレゾラト) ア
ルミニウム (III)、ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリラト) (パラ
フェニルフェノラト) アルミニウム (III)、ビス (2-メチル-5-シアノー-8
-キノリラト) (オルトクレゾラト) アルミニウム (III)、ビス (2-メチル
-6-トリフルオロメチル-8-キノリラト) (2-ナフトラト) アルミニウム
(III)、ビス (2-メチル-8-キノリラト) アルミニウム (III) -μ-オキソ
-ビス (2-メチル-8-キノリラト) アルミニウム (III)、ビス (2, 4-ジ
メチル-8-キノリラト) アルミニウム (III) -μ-オキソ-ビス (2, 4-ジ
メチル-8-キノリラト) アルミニウム (III)、ビス (4-エチル-2-メチル-
8-キノリラト) アルミニウム (III) -μ-オキソ-ビス (4-エチル-2-メチ
ル-8-キノリラト) アルミニウム (III)、ビス (2-メチル-4-メトキシキノ
リラト) アルミニウム (III) -μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-メトキシキノ
リラト) アルミニウム (III)、ビス (5-シアノー-2-メチル-8-キノリラ
ト) アルミニウム (III) -μ-オキソ-ビス (5-シアノー-2-メチル-8-キノ
リラト) アルミニウム (III)、ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-
8-キノリラト) アルミニウム (III) -μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-トリ
フルオロメチル-8-キノリラト) アルミニウム (III) 等が挙げられる。

本発明の有機EL素子で使用する電子輸送性化合物は、下記一般式 (5) 又は
(6) で表されるアントラセン誘導体であってもよい。



(式中、 A^1 及び A^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のモノフェニル
アントリル基又は置換もしくは無置換のジフェニルアントリル基を表し、それら
はたがいに同一でも異なってもよく、Lは、単結合又は二価の連結基を表す
。)



(式中、 A_n は、置換もしくは無置換のアントラセン残基を示し、 A^3 及び A^4 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数 10～40 の一価の縮合芳香族環基又は置換もしくは無置換の炭素数 12～40 の非縮合環系アリール基を示し、それらはたがいに同一でも異なってもよい。)

上記一般式 (5) 及び (6) における置換基としては、例えば、炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 3～6 のシクロアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基、炭素数 5～18 のアリールオキシ基、炭素数 7～18 のアラルキルオキシ基、炭素数 5～16 のアリール基で置換されたアミノ基、ニトロ基、シアノ基、炭素数 1～6 のエステル基、ハロゲン原子及びアルケニル基等が挙げられる。

炭素数 1～6 のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*tert*-ブチル基、各種ペンチル基、各種ヘキシル基等が挙げられる。

炭素数 3～6 のシクロアルキル基としては、シクロプロピル基、シクロブチル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等が挙げられる。

炭素数 1～6 のアルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*tert*-ブトキシ基、各種ペンチルオキシ基、各種ヘキシルオキシ基等が挙げられる。

炭素数 5～18 のアリールオキシ基としては、フェノキシ基、トリルオキシ基、ナフチルオキシ基等が挙げられる。

炭素数 7～18 のアラルキルオキシ基としては、ベンジルオキシ基、フェネチルオキシ基、ナフチルメトキシ基等が挙げられる。

炭素数 5～16 のアリール基で置換されたアミノ基としては、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ナフチルフェニルアミノ基等が挙げられる。

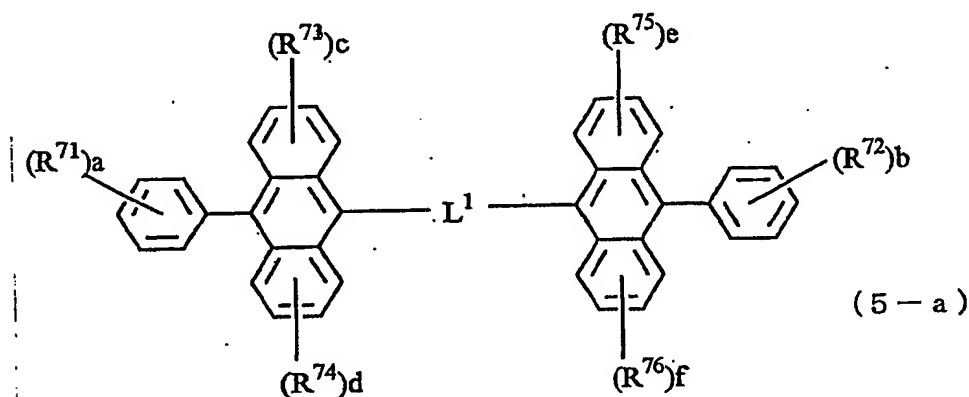
炭素数 1～6 のエステル基としては、メトキシカルボニル基、エトキシカルボ

ニル基、プロボキシカルボニル基、イソプロボキシカルボニル基等が挙げられる。

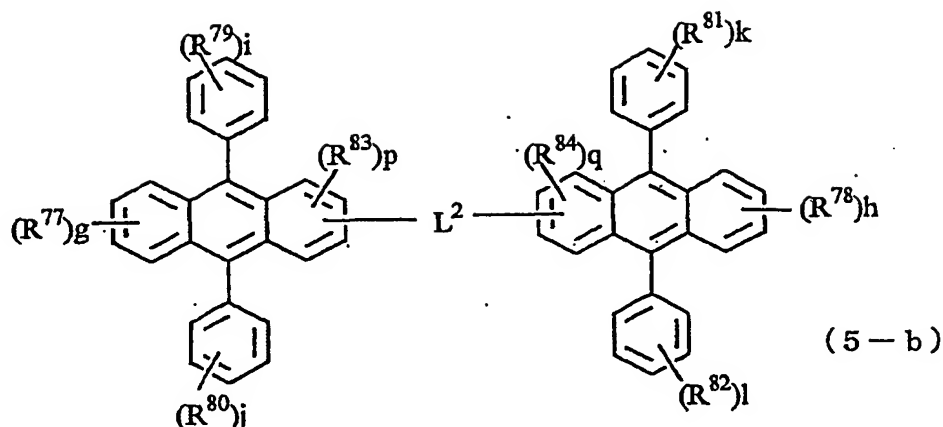
ハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

また、前記アリール基としては、スチリルフェニル、スチリルビフェニル、スチリルナフチル等も含まれる。

前記一般式(5)で表されるアントラセン誘導体としては、例えば、下記一般式(5-a)又は一般式(5-b)で表されるものが挙げられる。



(式中、 $R^{71} \sim R^{76}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、置換もしくは無置換のアリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基又は置換もしくは無置換の複素環基を表し、 a 及び b は、それぞれ0～5の整数、 c 、 d 、 e 及び f は、それぞれ0～4の整数を表し、それらが2以上の場合、 R^{71} 同士、 R^{72} 同士、 R^{73} 同士、 R^{74} 同士、 R^{75} 同士又は R^{76} 同士は、それぞれ同一でも異なってもよく、 R^{71} 同士、 R^{72} 同士、 R^{73} 同士、 R^{74} 同士、 R^{75} 同士又は R^{76} 同士は結合して環を形成していてもよい。 L^1 は、単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R)-$ (R はアルキル基又は置換もしくは無置換のアリール基である)又はアリーレン基を示す。)

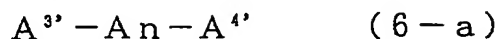


(式中、 $R^{77} \sim R^{84}$ は、それぞれ独立に、アルキル基、シクロアルキル基、アルケニル基、置換もしくは無置換のアリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基又は置換もしくは無置換の複数環基を示し、 g 及び h は、それぞれ0～4の整数、 i 、 j 、 k 及び l は、それぞれ0～5の整数、 p 及び q は、それぞれ0～3の整数を示し、それらが2以上の場合、 R^{77} 同士、 R^{78} 同士、 R^{79} 同士、 R^{80} 同士、 R^{81} 同士又は R^{82} 同士は、それぞれ同一でも異なっているもよく、また R^{77} 同士、 R^{78} 同士、 R^{79} 同士、 R^{80} 同士、 R^{81} 同士又は R^{82} 同士が結合して環を形成しているもよい。 L^2 は、単結合、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R)-$ (R はアルキル基又は置換もしくは無置換のアリール基である) 又はアリーレン基を示す。)

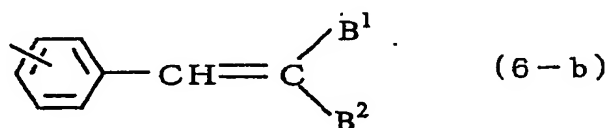
上記一般式 (I-a) 及び (I-b) の $R^{77} \sim R^{84}$ において、アルキル基としては炭素数1～6のものが、シクロアルキル基としては炭素数3～6のものが、アリール基としては炭素数5～18のものが、アルコキシ基としては炭素数1～6のものが、アリールオキシ基としては炭素数5～18のものが、アリールアミノ基としては炭素数5～16のアリール基で置換されたアミノ基が、複素環式基としてはトリアゾール基、オキサジアゾール基、キノキサリン基、フラニル基やチエニル基等が好ましい。

また、 L^1 及び L^2 の $-N(R)-$ において、 R で示されるアルキル基としては炭素数1～6のものが、アリール基としては炭素数5～18のものが好ましい。

前記一般式(6)で表されるアントラセン誘導体としては、例えば、下記一般式(6-a)



(式中、 A_n は、置換もしくは無置換の二価のアントラセン残基を示し、 $A^{3'}$ 及び $A^{4'}$ は、それぞれ独立に、いずれも置換もしくは無置換のビフェニル、フルオランテン、ナフタレン、フェナントレン、アントラセン、ピレン、ペリレン、コロネン、クリセン、ピセン、フルオレン、ターフェニル、ジフェニルアントラセン、ビフェニル、N-アルキルもしくはアリールカルバゾール、トリフェニレン、ルピセン、ベンゾアントラセン又はジベンゾアントラセンの一価の残基、又は下記一般式(6-b)



(式中、 B^1 、 B^2 は、いずれも置換もしくは無置換のフェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、ターフェニル基、アントリル基を示す。)で表される基を表す。)が好ましい。

なお、上記一般式(6-a)における A_n 、 $A^{3'}$ 及び $A^{4'}$ の置換基としては、一般式(5)及び(6)と同様のものが挙げられる。

本発明においては、アントラセン誘導体は一種用いてもよく、二種以上を組み合わせ用いてもよい。

本発明の有機EL素子で使用する電子輸送性化合物は、Si含有環誘導体であってもよく、例えば、シラシクロペンタジエン誘導体等が挙げられる。

本発明の有機EL素子において、有機発光媒体層の厚さとしては、5~200nmが好ましく、特に素子の印加電圧を非常に低くしうることから、10~100nmが好適である。

本発明の有機EL素子は、前記（A）成分と（B）成分とを混合して有機発光媒体層に用いることにより、有機発光媒体層がより非晶質となって、結晶化が抑制され、安定性が向上し、耐熱性に優れるものになる。（B）成分の化合物としては、ガラス転移温度が110℃以上のものが好ましい。このようなガラス転移温度を有する化合物を混合することにより、有機発光媒体層のガラス転移点を110℃以上にすることができ、85℃、500時間以上での保存耐熱性も得ることが可能となる

さらに、（A）成分と（B）成分の配合比率を調整することにより、発光色の色度や発光スペクトルのピーク波長を制御できる。（A）成分の割合を増やすと、発光スペクトルのピークは長波長に移動し、色度座標のx座標は増加する。これは（A）成分に関与する発光帯のスペクトルピークが長波長であるため、発光が再び（A）成分により吸収されるからである。

（A）成分と（B）成分の好ましい混合比率は、重量比8：92～92：8の割合であることが好ましい。（A）成分が8重量%より少ないと、正孔輸送性化合物の最低被占軌道を通して再結合領域まで正孔が輸送されにくくなる。これは、（A）成分が8重量%より少ないと素子の印加電圧が高くなることより判明する。また、92重量%より多いと、電子輸送性化合物の最低非被占軌道を通して電子が輸送されにくくなる。（A）成分と（B）成分の混合比率は、重量比15：60～85：40の割合であると、素子が長寿命になることから好ましい。

本発明の有機EL素子において、前記有機発光媒体層の混合層が、さらに（C）蛍光性化合物を含有すると、一層耐熱性と発光効率が向上することから好ましい。特に、前記有機発光媒体層の混合層が、（A）成分と（B）成分の合計量と（C）成分とを、重量比100：1～10：1の割合で含有すると好ましい。

本発明の有機EL素子は、電極と有機発光媒体層の間に種々の中間層を介在させるのが好ましい。中間層としては、例えば、正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層等が挙げられる。これらの中間層を形成する物質としては、有

機、無機の種々の化合物が知られている。

本発明の有機EL素子の代表的な素子構成としては、

陽極／有機発光媒体層／陰極

陽極／正孔注入層／有機発光媒体層／陰極

陽極／有機発光媒体層／電子注入層／陰極

陽極／正孔注入層／有機発光媒体層／電子注入層／陰極

陽極／有機半導体層／有機発光媒体層／陰極

陽極／有機半導体層／電子障壁層／有機発光媒体層／陰極

陽極／有機半導体層／有機発光媒体層／付着改善層／陰極

陽極／正孔注入層／正孔輸送層／有機発光媒体層／電子注入層／陰極

等が挙げられるが、これらに限定されるものではない。

この有機EL素子は、通常透光性の基板上に作製する。この透光性基板は有機EL素子を支持する基板であり、その透光性については、400～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上、好ましくは80%以上であるものが望ましく、さらに平滑な基板を用いるのが好ましい。

前記透光性基板としては、例えば、ガラス板、合成樹脂板等が好ましい。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウムストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等で成形された板等が挙げられる。また、合成樹脂板としては、ポリカーボネート樹脂、アクリル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリエーテルサルファイド樹脂、ポリサルフォン樹脂の板等が挙げられる。

前記陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物を電極物質とするものが好ましい。このような電極物質としては、Au等の金属、CuI、ITO(インジウムチンオキシド)、SnO₂、ZnO又はIn-Zn-O等の導電性材料が挙げられる。陽極は、これらの電極物質を、蒸着法やスパッタリング法等の方法で薄膜を形成させることがで

きる。前記陽極は、前記発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくなるような特性を有していることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下が好ましい。さらに、陽極の膜厚は、材料にもよるが通常10nm~1 μ m、好ましくは10~200nmの範囲である。

前記陰極としては、仕事関数の小さい(4eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物又はこれらの混合物を電極物質とするものが好ましい。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム-銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム、Al/Li₂O、Al/LiO₂、Al/LiF、アルミニウム-リチウム合金、インジウム、希土類金属等が挙げられる。陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリング等の方法で薄膜を形成させることができる。この陰極は、前記有機発光媒体層からの発光を陰極から取り出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。また、陰極としてのシート抵抗は、数百 Ω/\square 以下が好ましく、さらに、陰極の膜厚は、材料にもよるが通常10nm~1 μ m、好ましくは50~200nmである。

本発明の有機EL素子においては、このようにして作製された一対の電極の少なくとも一方の表面に、カルコゲナイド層、ハロゲン化金属層又は金属酸化物層(以下、これらを表面層ということがある。)を設けるのが好ましい。具体的には、有機発光媒体層側の陽極表面にケイ素やアルミニウム等の金属のカルコゲナイド(酸化物を含む)層を、また、有機発光媒体層側の陰極表面にハロゲン化金属層又は金属酸化物層を配置するのがよい。これにより、より発光媒体に正孔または電子が注入されやすくなり、素子が低電圧駆動となる。

前記カルコゲナイドとしては、例えば、SiO_x (1 \leq X \leq 2)、AlO_x (1 \leq X \leq 1.5)、SiON又はSiAlON等が好ましく、ハロゲン化金属としては、例えば、LiF、MgF₂、CaF₂又はフッ化希土類金属等が好まし

く、金属酸化物としては、例えば、 Cs_2O 、 Li_2O 、 MgO 、 SrO 、 BaO 又は CaO 等が好ましい。

本発明の有機EL素子においては、前記(A)成分と(B)成分との使用割合によって、有機発光媒体層の電子輸送性及び正孔輸送性共に良好となり、前記した正孔注入層、正孔輸送層及び電子注入層などの中間層を省略することが可能となる。この場合においても、前記表面層を設けることが好ましい。

また、本発明の有機EL素子は、一对の電極の少なくとも一方の表面に、還元性ドーパントと電子伝達化合物の混合領域又は酸化性ドーパントと正孔伝達化合物の混合領域が設けられていることが好ましい。このようにすると、電子伝達化合物が還元され、アニオンとなり混合領域がより発光媒体に電子を注入、伝達しやすくなり、素子が低電圧駆動となる。また、正孔伝達化合物は酸化され、カチオンとなり混合領域がより発光媒体に正孔を注入、伝達しやすくなる。酸化性ドーパントとしては、各種ルイス酸やアクセプター化合物等が挙げられる。還元性ドーパントとしては、アルカリ金属、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属、希土類金属又はこれらの化合物等が挙げられる。

本発明の有機EL素子においては、有機発光媒体層は、(1)注入機能；電界印加時に陽極又は正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極又は電子注入層より電子を注入することができる機能、(2)輸送機能；注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる機能、(3)発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し発光させる機能を有する。

さらに、本発明の有機EL素子は、前記有機発光媒体層に正孔を注入する陽極の仕事関数 WF と、前記正孔輸送性化合物のイオン化エネルギー $IP1$ が、 $IP1 - WF \leq 0.2 \text{ eV}$ の関係を満たすことが好ましい。このようにすることで、発光媒体に対する陽極からの正孔注入が高まり、さらには正孔注入層を省くことも可能となり素子が簡素化するため、素子の製造コストを低下できる。

この有機発光媒体層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法

、ラングミュア・プロジェクト法（LB法）等の公知の方法を適用することができる。有機発光媒体層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着されることにより形成された薄膜や、溶液状態又は液相状態の材料化合物から固体化されることにより形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは、凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。

また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、有機発光媒体層を形成することができる。

本発明においては、本発明の目的が損なわれない範囲で、所望により、有機発光媒体層に、前記（A）成分、（B）成分及び（C）成分以外の他の公知の有機発光媒体を含有させてもよく、本発明に係る化合物を含有する有機発光媒体層に、他の公知の有機発光媒体を含有する有機発光媒体層を積層してもよい。

前記正孔注入層及び正孔輸送層は、有機発光媒体層への正孔注入を助け、発光領域まで輸送する層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが通常5.5 eV以下と小さい。このような正孔注入層及び正孔輸送層としては、より低い電界強度で正孔を有機発光媒体層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6$ V/cmの電界印加時に、少なくとも 10^{-6} cm²/V・秒であるものが好ましい。このような材料としては、従来、光導伝材料において正孔の電荷輸送材料として使用されているものや、有機EL素子の正孔注入層に使用されている公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

この正孔注入層及び正孔輸送層を形成するには、正孔注入層及び正孔輸送層の材料物質を、例えば、真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化すればよい。この場合、正孔注入層及び正孔輸送層として

の膜厚は、特に制限はないが、通常は5 nm～5 μmである。

前記電子注入層は、有機発光媒体層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また前記付着改善層は、この電子注入層の中で特に陰極との付着がよい材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体が好ましい。前記8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体としては、オキシシン（一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン）のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物、例えば、トリス（8-キノリノール）アルミニウムを電子注入材料として用いることができる。

本発明の有機EL素子を作製する方法は、例えば前記した各種材料及び方法により陽極、有機発光媒体層、必要に応じて正孔注入層、電子注入層を形成し、最後に陰極を形成すればよい。また、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

以下、透光性基板上に、陽極／正孔注入層／有機発光媒体層／電子注入層／陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例について説明する。

まず、適当な透光性基板上に、陽極材料からなる薄膜を1 μm以下、好ましくは10～200 nmの範囲の膜厚になるように、蒸着法又はスパッタリング法により形成し、陽極とする。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の方法により行うことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は正孔注入層の材料として使用する化合物、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50～450℃、真空度 10^{-7} ～ 10^{-3} torr、蒸着速度0.01～50 nm/秒、基板温度-50～300℃、膜厚5 nm～5 μmの範囲で適宜選択することが好ましい。

次に、この正孔注入層上に有機発光媒体層を設ける。この有機発光媒体層の形成も、本発明に係る有機発光媒体を用いて真空蒸着法、スパッタリング、スピンコート法、キャスト法等の方法により、有機発光媒体を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により有機発光媒体層を形成する場合、その蒸着条件は使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層の形成と同様な条件範囲の中から選ばれる。膜厚は10～40 nmの範囲が好ましい。

次に、この有機発光媒体層上に電子注入層を設ける。この場合にも正孔注入層、有機発光媒体層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は正孔注入層、有機発光媒体層と同様の条件範囲から選択することができる。

最後に、電子注入層上に陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は金属から構成され、蒸着法、スパッタリングを用いることができ、特に、下地の有機物層を製膜時の損傷から守るためには真空蒸着法が好ましい。

有機EL素子の作製は、一回の真空引きで、一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

この有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、3～40 Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに、交流電圧を印加した場合には、陽極が+、陰極が-の極性になった時のみ均一な発光が観測される。この場合、印加する交流の波形は任意でよい。

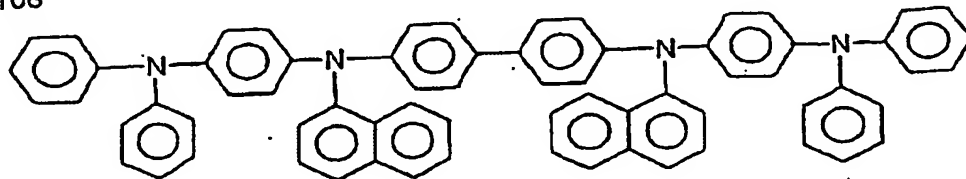
次に、本発明を実施例により、さらに詳しく説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例1（重量比40：20）

25×75×1.1 mm厚のガラス基板上に、膜厚120 nmのインジウムスズ酸化物からなる透明電極を設けた。このガラス基板に紫外線及びオゾンを照射して洗浄を行ったのち、真空蒸着装置にこのガラス基板を設置した。

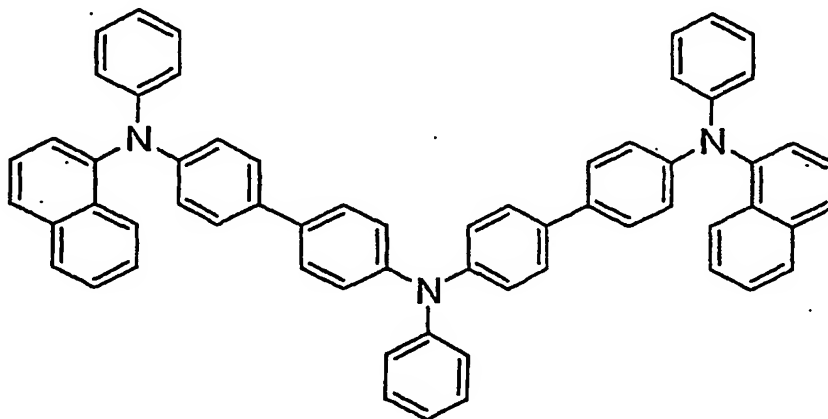
まず、透明電極に正孔注入層として下記TPD106

TPD 106



を60 nmの厚さに蒸着したのち、その上に正孔輸送層として下記TPD78

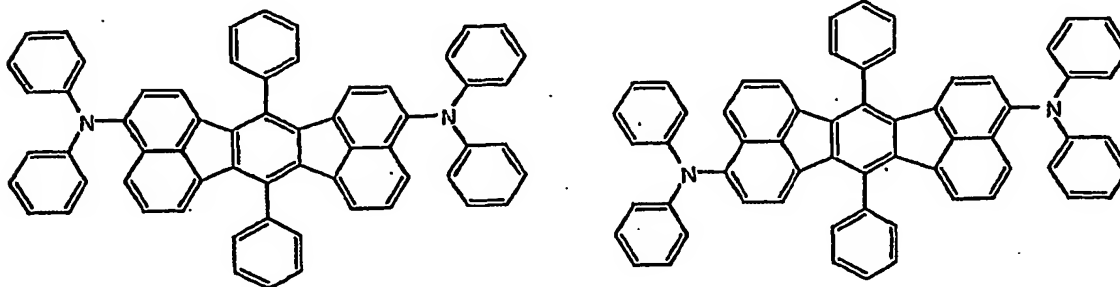
TPD 7 8



を20 nmの厚さに蒸着した。次いで正孔輸送性化合物として下記DC5

DC5 : 異性体比 70 / 30 の混合物

DC 5



3, 11位にジフェニルアミノ基 (70) 3, 10位にジフェニルアミノ基 (30) .

と電子輸送性化合物としてAlq（8-ヒドロキシキノリンのAl錯体）を、重量比67.7：32.3で同時蒸着し、厚さ40nmの有機発光媒体層を形成した。その後、電子注入層としてAlqを20nmの厚さに蒸着した。

尚、DC5のエネルギーギャップ（Eg1）は2.57eVであり、Alqのエネルギーギャップ（Eg2）2.7eVより小さく、DC5のイオン化エネルギー（Ip1）は5.6eVであり、Alqのイオン化エネルギー（Ip2）5.7eVより小さく、DC5の電子親和力（Af1）は3.0eVであり、Alqの電子親和力（Af2）3.0eVと同じである。

次に、ハロゲン化アルカリ金属であるLiFを0.3nmの厚さに蒸着し、さらにAlを100nmの厚さに蒸着した。このAl/LiFは陰極である。以上のようにして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子について、通電試験を行ったところ、電圧4.5V、電流密度2.46mA/cm²にて、発光輝度110cd/m²の赤橙色発光が得られ、色度座標（0.6039, 0.3931）、発光効率は4.47cd/Aであった。また、初期光輝度500cd/m²にて定電流駆動の連続試験を行ったところ、半減寿命は3120時間であり、極めて長寿命であった。

実施例 2

実施例1において、有機発光媒体層を形成するDC5とAlqの比率を、重量比44.4：55.6とした以外は同様にして有機EL素子を作製した。

得られた有機EL素子について、通電試験を行ったところ、電圧4.0V、電流密度2.71mA/cm²にて、発光輝度109cd/m²の赤色発光が得られ、色度座標（0.5886, 0.4072）、発光効率は4.02cd/Aであった。また、初期光輝度500cd/m²にて定電流駆動の連続試験を行ったところ、半減寿命は3760時間であり、極めて長寿命であった。

実施例 3

実施例1において、有機発光媒体層を形成するDC5とAlqの比率を、重量

比 28.6 : 71.4 とした以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、通電試験を行ったところ、電圧 4.0 V、電流密度 2.96 mA/cm^2 にて、発光輝度 124 cd/m^2 の赤色発光が得られ、色度座標 (0.5741, 0.4228)、発光効率 4.19 cd/A であった。また、初期光輝度 500 cd/m^2 にて定電流駆動の連続試験を行ったところ、半減寿命は 4100 時間であり、極めて長寿命であった。

実施例 4

実施例 1 において、有機発光媒体層を形成する DC5 と Alq の比率を、重量比 12 : 88 とした以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、通電試験を行ったところ、電圧 4.5 V、電流密度 3.0 mA/cm^2 にて、発光輝度 135 cd/m^2 の赤色発光が得られ、色度座標 (0.5652, 0.4352)、発光効率 4.50 cd/A であった。また、初期光輝度 500 cd/m^2 にて定電流駆動の連続試験を行ったところ、半減寿命は 2900 時間であり、極めて長寿命であった。

比較例 1

実施例 1 において、有機発光媒体層を形成する DC5 と Alq の比率を、重量比 2.4 : 97.6 とした以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、電圧 6 V で 1.30 mA/cm^2 の電流が流れた。したがって実施例 1～4 の有機 EL 素子より印加電圧が高くなっている。また発光輝度は 173 cd/m^2 であり、色度座標は (0.5416, 0.4550)、発光効率は 8.78 cd/A であった。したがって、実施例 1～4 に比較して赤色純度が不十分であった。また、初期光輝度 500 cd/m^2 で直流の連続通電テストを行ったところ、半減寿命は 970 時間であり、実施例 1～4 に比較して非常に短かった。

比較例 2

実施例 1 において、有機発光媒体層を形成する DC5 と Alq の比率を、重量

比 4.8 : 95.2 とした以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、比較例 1 と同じ輝度を示す電圧を測定したところ 7.3 V と高電圧化した。

比較例 3

実施例 1 において、有機発光媒体層を形成する DC5 と Alq の比率を、重量比 9.1 : 90.9 とした以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、比較例 1 と同じ輝度を示す電圧を測定したところ 7.1 V と高電圧化した。

比較例 2 及び 3 より、明らかに DC5 により輸送される正孔に対して Alq がトラップとなり印加電圧が高くなったと結論できた。一方、10 重量%を超えて DC5 が添加された素子は急激に低電圧化している。これは DC5 が正孔輸送性の化合物として機能し正孔が高効率で輸送されたため低電圧化したと結論できる。

比較例 4

実施例 1 において、DC5 の代わりにエネルギーギャップ (E_g) が 3.0 eV の TPD (N, N'-ビス (m-メチルフェニル) -N, N'-ジフェニル-1, 1'-ビフェニル-4, 4'-ジアミン) を使用した以外は同様にして有機 EL 素子を作製した。

得られた有機 EL 素子について、電圧 5.6 V で 2.8 mA/cm^2 の電流が流れた。発光輝度は 56 cd/m^2 の緑色発光であった。発光効率は 2.0 cd/A であった。また、初期光輝度 500 cd/m^2 で直流の連続通電テストを行ったところ、半減寿命はわずか 130 時間であった。したがって、発光効率及び寿命ともに実施例 1 の方が、比較例 4 より優れ、 $E_g 1 \geq E_g 2$ の有機 EL 素子は実用上問題がある。

産業上の利用可能性

以上、詳細に説明したように、本発明によれば、従来より寿命が長く、かつ発光効率が高い有機EL素子が得られる。このため、本発明の有機EL素子は、例えば情報機器のディスプレイなどに好適に用いられる。

請求の範囲

1. 一对の電極と、これらの電極間に挟持された有機発光媒体層とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機発光媒体層が (A) 少なくとも一種の正孔輸送性化合物と、(B) 少なくとも一種の電子輸送性化合物とを、重量比 8 : 92 ~ 92 : 8 の割合で含有する混合層を有し、前記正孔輸送性化合物のエネルギーギャップ E_{g1} と前記電子輸送性化合物のエネルギーギャップ E_{g2} が、

$$E_{g1} < E_{g2}$$

の関係を満たす有機エレクトロルミネッセンス素子。

2. 前記正孔輸送性化合物のイオン化エネルギー $IP1$ と前記電子輸送性化合物のイオン化エネルギー $IP2$ が、

$$IP1 \leq IP2$$

の関係を満たす請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

3. 前記正孔輸送性化合物の電子親和力 $Af1$ と前記電子輸送性化合物の電子親和力 $Af2$ が、

$$Af1 \leq Af2$$

の関係を満たし、かつ $\Delta E_v = IP2 - IP1$ と $\Delta E_c = Af2 - Af1$ が、

$$\Delta E_v \geq \Delta E_c$$

の関係を満たす請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

4. 前記正孔輸送性化合物の電子親和力 $Af1$ と前記電子輸送性化合物の電子親和力 $Af2$ が、

$$Af1 > Af2$$

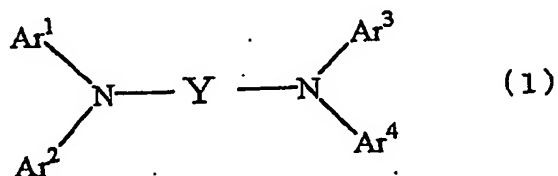
の関係を満たし、かつ $\Delta E_v = IP2 - IP1$ と $\Delta E_{c'} = Af1 - Af2$ が、

$$\Delta E_v \geq \Delta E_{c'}$$

の関係を満たす請求項 2 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

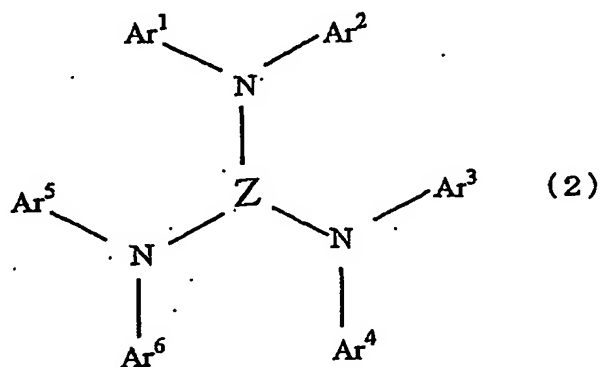
5. 前記正孔輸送性化合物が、縮合環を有する芳香族アミンである請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

6. 前記芳香族アミンが、下記一般式(1)で表される請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



(式中、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基を表す。Yは、置換もしくは無置換の炭素数2～60の芳香族残基を表す。ただし、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ 及びYのうち少なくとも一つは環数が3以上の縮合環基を含有し、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ 及びYの置換基は、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^4$ 及びYのうちの任意の2つと環を形成していてもよい。)

7. 前記芳香族アミンが、下記一般式(2)で表される請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



(式中、 $\text{Ar}^1 \sim \text{Ar}^6$ は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数6～40の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数3～40の芳香族複素環基を表す。Zは、置換もしくは無置換の炭素数3～60の芳香族残基を表す。た

P C T

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)
〔P C T 1 8 条、P C T 規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 F I - 2 3 0 3	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(P C T / I S A / 2 2 0) 及び下記 5 を参照すること。	
国際出願番号 P C T / J P 0 3 / 0 8 4 6 3	国際出願日 (日.月.年) 0 3 . 0 7 . 0 3	優先日 (日.月.年) 1 9 . 0 7 . 0 2
出願人 (氏名又は名称) 出光興産株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条 (P C T 1 8 条) の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 5 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出された磁気ディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された磁気ディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列と磁気ディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☒ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第47条 (P C T 規則38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 _____ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

本願請求の範囲には次の事項を「技術的特徴」とする3つの発明群が包含されている。

- ①有機発光媒体層が、アリールアミン化合物と、本願式(I)で表される化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- ②有機発光媒体層が、アリールアミン化合物と、本願式(II)で表される化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- ③有機発光媒体層が、アリールアミン化合物と、本願式(III)で表される化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子材料。
- ④有機発光媒体層が、アリールアミン化合物と、本願式(IV)で表される化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子材料。 特別ページに続く

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

Translation of Category of Cited Documents in the attached foreign language Search Report:

- A:** It is not a reference with a special relation but shows a general technical level.
- E:** It is a prior art, however it was disclosed after the international application date.
- L:** It is a reference for raising arguments in priorities claimed or a reference for establishing the publication date of other references or other special reasons (with reasons).
- O:** It is a reference mentioned in oral presentation, usage, display, etc.
- P:** It is a reference disclosed before the international publication date and after the application date on the basis of which priority is claimed.
- T:** It is a reference disclosed after the international publication date or priority date, is not contradictory to the application, and is cited to understand the principle or theory of the invention.
- X:** It is a reference with a special relation and it is considered that there is no new creation or progress of the invention by only said reference.
- Y:** It is a reference with a special relation and is considered that there is no progress by a combination of said reference and one or more other references, which is evident for the parties concerned.
-
- &:** It is the same patent family reference.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K11/06、H05B33/14、H05B33/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K11/06、H05B33/14、H05B33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 3-790 A(株式会社リコー)1991.01.07、特許請求の範囲、第2頁 左下欄2行~右下欄最下行(ファミリーなし)	1, 7, 8, 12, 15, 16
Y		5, 6, 9-11, 13, 14
X	JP 2000-344691 A(ティーディーケイ株式会社)2000.12.12、特許請 求の範囲、【0083】欄(ファミリーなし)	1-3, 12, 15-17
Y		5, 6, 9-11, 13, 14

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

15.10.03

国際調査報告の発送日

28.10.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渡辺 陽子

4V

9279

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	WO 2002/52904 A1(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)2002. 07. 04 &JP 2002-198183 A &US 2002/0098379 A1 & EP 1347671 A1	1-4, 7, 8, 12, 13, 14, 15-17
Y		5, 6, 9-11
X	US 5989737 A(XEROX CORPORATION)1999. 11. 23 & JP 10-255985 A	1, 5, 8, 9, 12, 16
Y		5, 6, 9-11, 13, 14
Y	JP 2002-50481 A(東レ株式会社)2002. 02. 15、特許請求の範囲、【0024】～【0025】欄、(ファミリーなし)	6, 16
Y	WO 99/40655 A1(AVENTIS RESEARCH & TECHNOLOGIES GMBH & CO. KG)1999. 08. 12 &JP 2002-503037 A	5, 16
Y	EP 1219590 A1(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)2002. 07. 03 &WO 02/20460 A1 &JP 2002-80433 A	9
Y	EP 1138745 A1(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)2001. 10. 04 & WO 01/023497 A1	9
Y	US 2002/0037427 A1(Toshiki Taguchi)2002. 03. 08 & JP 2001-279237 A	10
Y	JP 2000-273056 A(出光興産株式会社)2000. 10. 03、特許請求の範囲、【0012】欄、【0016】～【0017】欄(ファミリーなし)	9, 10
Y	US 2002/034654 A1(NEC Corporation)2002. 03. 21 &JP 2001-176664 A	11
Y	US 2002/0022150 A1(NEC Corporation)2002. 02. 21 &JP 2001-338760 A	11

⑤有機発光媒体層が、アリールアミン化合物と、金属錯体化合物を含む有機エレクトロルミネッセンス素子材料。

①、②、③、④、⑤のうちいずれか2つの発明群に共通する「技術的特徴」は、有機発光媒体層がアリールアミン化合物と発光材料を含む有機エレクトロルミネッセンス素子であるが、そのような有機エレクトロルミネッセンス素子は知られている（例えば特開平3-790号公報、特開平4-178487号公報、特開平5-78655号公報）ので、当該「技術的特徴」はPCT規則13.2における「特別な技術的特徴」に該当するとは認められない。

したがって、①、②、③、④、⑤は互いに共通する「特別の技術的特徴」を持たない。

だし、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 及び Z のうち少なくとも一つは環数が 3 以上の縮合環基を含有し、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 及び Z の置換基は、 $Ar^1 \sim Ar^6$ 及び Z のうちの任意の 2 つと環を形成していてもよい。）

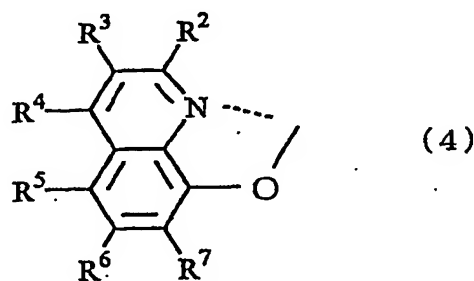
8. 前記電子輸送性化合物が、含窒素複素環化合物又は含窒素錯体である請求項 1 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

9. 前記含窒素錯体が、下記一般式 (3) で表される請求項 8 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



(式中、 M は 1 ～ 3 価の金属、 A は窒素含有配位子、 B は窒素を含有しない配位子を表し、 m は 1 ～ 4 の整数、 n は 0 ～ 2 の整数、 $m+n \leq 4$ である。)

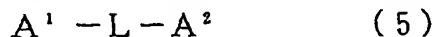
10. 前記窒素含有配位子が、下記の一般式 (4) で表される請求項 9 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



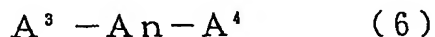
(式中、 $R^2 \sim R^7$ は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、ヒドロキシ基、置換もしくは無置換のアミノ基、ニトロ基、シアノ基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 30 のアルケニル基、置換もしくは無置換の炭素数 5 ～ 30 のシクロアルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 1 ～ 30 のアルコキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の炭素数 3 ～ 40 の芳香族複素環基、置換もしくは無置換の炭素数 7 ～ 40 のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数 6 ～ 40 のアリールオキシ基、置換もしくは無置換の炭素数 2 ～ 40 のアルコシキカルボニル基又はカルボキシ基を表し、 $R^2 \sim R^7$ は、任意の 2 つ

で環を形成していてもよい。)

11. 前記電子輸送性化合物が、下記一般式(5)又は(6)で表される請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。



(式中、 A^1 及び A^2 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換のモノフェニルアントリル基又は置換もしくは無置換のジフェニルアントリル基を表し、それらはたがいに同一でも異なってもよく、 L は、単結合又は二価の連結基を表す。)



(式中、 A_n は、置換もしくは無置換のアントラセン残基を示し、 A^3 及び A^4 は、それぞれ独立に、置換もしくは無置換の炭素数10～40の一価の縮合芳香族環基又は置換もしくは無置換の炭素数12～40の非縮合環系アリール基を示し、それらはたがいに同一でも異なってもよい。)

12. 前記電子輸送性化合物が、Si含有環誘導体である請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

13. 前記有機発光媒体層の混合層が、さらに(C)蛍光性化合物を含有する請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

14. 前記有機発光媒体層が、(A)成分と(B)成分の合計量と(C)成分とを、重量比100:1～10:1の割合で含有する請求項13に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

15. 一对の電極の少なくとも一方の表面に、カルコゲナイド層、ハロゲン化金属層又は金属酸化物層が設けられている請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

16. 一对の電極の少なくとも一方の表面に、還元性ドーパントと電子伝達化合物の混合領域又は酸化性ドーパントと正孔伝達化合物の混合領域が設けられている請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

17. 前記有機発光媒体層に正孔を注入する陽極の仕事関数WFと、前記正孔輸送性化合物のイオン化エネルギーIP1が、

$$IP1 - WF \leq 0.2 \text{ eV}$$

の関係を満たす請求項1に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

18. 一对の電極と、これらの電極間に挟持された有機発光媒体層とを有する有機エレクトロルミネッセンス素子であって、該有機発光媒体層が(A)少なくとも一種の正孔輸送性化合物と、(B)少なくとも一種の電子輸送性化合物とを含有する混合層を有し、前記正孔輸送性化合物のエネルギーギャップEg1と前記電子輸送性化合物のエネルギーギャップEg2が、

$$Eg1 < Eg2$$

の関係を満たし、前記有機発光媒体層中で、前記正孔輸送性化合物により正孔が輸送される有機エレクトロルミネッセンス素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP01/10789

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ H05B33/14, 33/22, C09K11/06		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ H05B33/00-33/28		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2002 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2002 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2002		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 2000-133453, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 12 May, 2000 (12.05.00), Full text; all drawings (Family: none)	1-18
A	JP, 4-334894, A (Ricoh Co., Ltd.), 20 November, 1992 (20.11.92), Full text; all drawings (Family: none)	1-18
A	JP, 2000-323281, A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 24 November, 2000 (24.11.00), Full text; all drawings (Family: none)	5-7
A	JP, 2000-344691, A (TDK Corp.), 12 December, 2000 (12.12.00), Full text; all drawings (Family: none)	11
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family	
Date of the actual completion of the international search 26 February, 2002 (26.02.02)		Date of mailing of the international search report 12 March, 2002 (12.03.02)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/10789

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 9-87616, A (Chisso Corp.), 31 March, 1997 (31.03.97), Full text; all drawings & US 5986121 A & US 6051319 A & JP 9-194487 A & EP 754691 A2	12
A	JP, 4-212286, A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 03 August, 1992 (03.08.92), Full text; all drawings (Family: none)	13-14
A	JP, 7-85972, A (Toshiba Corp.), 31 March, 1995 (31.03.95), Full text; all drawings (Family: none)	13-14
A	JP, 2000-315581, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 14 November, 2000 (14.11.00), Full text; all drawings (Family: none)	15

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP01/10789

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H05B 33/14, 33/22
C09K 11/06

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H05B 33/00-33/28

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2002年
 日本国登録実用新案公報 1994-2002年
 日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2000-133453 A (出光興産株式会社) 2000.05.12, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 4-334894 A (株式会社リコー) 1992.11.20, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-18
A	JP 2000-323281 A (富士写真フイルム株式会社) 2000.11.24, 全文, 全図 (ファミリーなし)	5-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26.02.02

国際調査報告の発送日

12.03.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

寺澤 忠司

3X 9623

電話番号 03-3581-1101 内線 3371

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2000-344691 A (ティーディーケイ株式会社) 2000. 12. 12, 全文, 全図 (ファミリーなし)	11
A	JP 9-87616 A (チッソ株式会社) 1997. 03. 31, 全文, 全図 & US 5986121 A & US 6051319 A & JP 9-194487 A & EP 754691 A2	12
A	JP 4-212286 A (旭化成工業株式会社) 1992. 08. 03, 全文, 全図 (ファミリーなし)	13-14
A	JP 7-85972 A (株式会社東芝) 1995. 03. 31, 全文, 全図 (ファミリーなし)	13-14
A	JP 2000-315581 A (出光興産株式会社) 2000. 11. 14, 全文, 全図 (ファミリーなし)	15